

補助事業番号 2020M-185

補助事業名 2020年度 革新的な軽量化を目的としたマルチマテリアル化による超軽量金属  
/樹脂積層材料の開発とその成形性に関する研究 補助事業

補助事業者名 渡利 久規

東京電機大学・理工学部・理工学科・機械工学系

## 1 研究の概要

本研究ではマルチマテリアル化の実現を目的として、溶湯から直接的にアルミニウム(Al)を9%以上含有した高Al含有マグネシウム(Mg)合金板材を急冷凝固して薄板を作成し、鑄造時の冷却速度、熱処理の温度を変えることで金属間化合物の分布形態を制御することで表面にサブマイクロオーダーの凹凸(粗面化)を形成する。この粗面化したMg合金および樹脂(PETまたはPA66)の表面にシランカップリング処理を施し、化学的な結合力(共有結合)を用いて接合する。すなわち、①結晶制御によるサブマイクロオーダーの表面の粗面化によるアンカー効果と、②シランカップリング処理による共有結合の組み合わせにより接着強度を改善した樹脂/Mg合金/樹脂の界面の接合機構を解明する。

## 2 研究の目的と背景

本研究では、高Al含有Mg合金を双ロール法により急冷凝固する際の $\beta$ 相の析出を制御し、 $\beta$ 相の分布形態がシランカップリング剤適用時に最も化学的結合力を高める表面状態を創成し、界面せん断強度が15MPa以上を実現できる接合方法を開発する。そして得られた樹脂/Mg合金/樹脂の三層積層材の温間プレス成形実験を行い、『マルチマテリアル化』の実現に向けた接合、成形加工に関わる技術の学術基盤の構築および体系化を目的とする。本研究では、(A)Mg合金急冷凝固時における $\beta$ 相の析出制御による粗面化と(B)シランカップリング処理による表面処理による化学結合、の二つの中核技術を組み合わせて、Mg合金/樹脂積層材の使用環境変化における熱応力差による界面応力にも対応できる接合技術を確立しようとする点であり、実用最軽量金属といわれるMg合金と樹脂に対して本法を提案した例はなく研究の創造性はここにあると考えている。

## 3 研究内容 <http://www.rm.dendai.ac.jp/watarilab/index.html>

### (1)急冷凝固高強度マグネシウム合金製造実験

マグネシウム(Mg)合金と樹脂を接合し、接合強度の高い接合方法を開発し引張せん断試験で15MPa以上の接合強度を保証する接合方法を提案することが重要である。このためには、Mg合金の表面状態をサブナノオーダーに凹凸をつけ接合強度を改善するための表面の粗面化を行う必要がある。このため、Al含有量の多いマグネシウム(Mg)合金の急冷凝固の際に晶出する $\beta$ -Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>相の析出状態の変化によりどのような粗面になるのかを表面の顕微鏡観察と断面曲線の取得により明らかにすることを目的として実験を行っている。

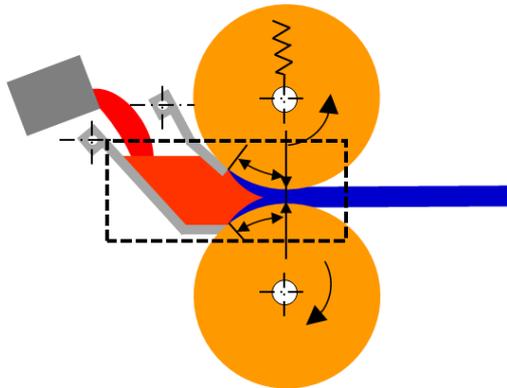


図1 急凝固Mg合金製造プロセス  
(双ロール鋳造法)

図2 急凝固Mg合金薄板材

(2) 急凝固高強度マグネシウム合金表面粗面化実験

急凝固した $\beta$ -Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>相の析出状態の変化によりどのような粗面となるのかを表面の顕微鏡観察と断面曲線の取得により明らかにすることを試みた。鋳造用のMg-Al系合金の中でAl元素の添加量が最も多いAM100を材料として作製した厚さ10 mmの双ロール鋳造材に異なる熱処理を行い供試材とした。すなわち、 $\beta$ -Mg<sub>17</sub>Al<sub>12</sub>相の析出状態を変化させた試料を作製するため作製した双ロール鋳造材を使用し、作製した双ロール鋳造材に溶体化処理を行った後、連続析出のみが生じる温度と不連続析出のみが生じる温度の2条件で時効処理を行った。

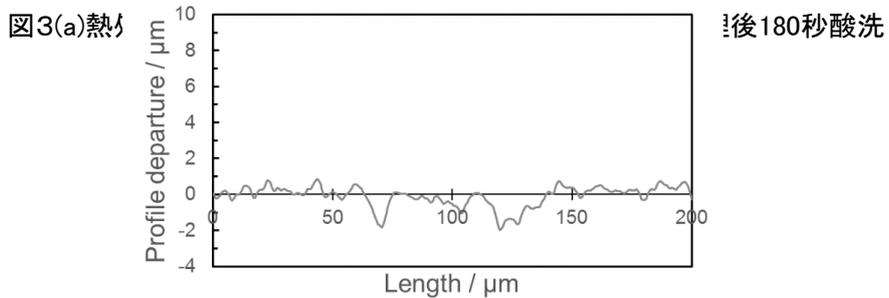
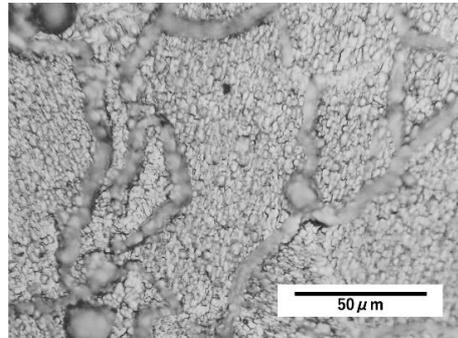
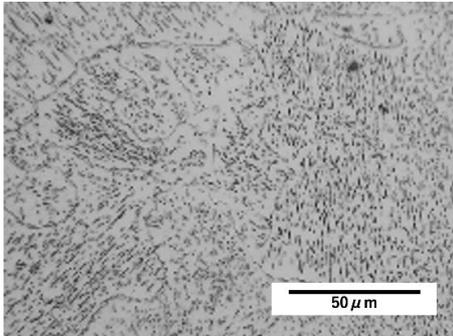


図4 酸洗後のAM100合金（633 K for 28.8×10 ks）の断面

図4に連続析出の条件で180秒酸洗した場合の表面の断面プロファイルの一例を示している。この場合の最大高さは約2 μm程度であり、粒内は1 μmより微細な凹凸ができることが確認された。この状態でシランカップリング剤を用いて、樹脂と接合すれば強固な接合になることが明らかになった。

(3) 急凝固高強度Mg合金凝固解析

実際の凝固の条件に関しては、凝固完了時点をどこに設定するかで結晶の組織やβ相の晶出が異なるため、凝固解析を行い実際の凝固の条件を予測しておく必要性がある。このため、本研究では図13に示す双ロール鋳造モデルの構築を検討した。解析では、ロール物性値を使用した。

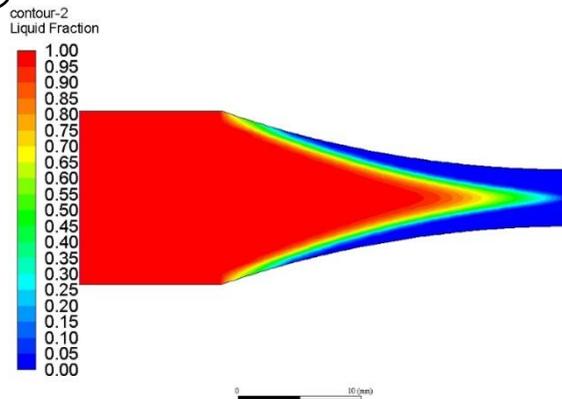


図5 液相率分布 (V=5m/s, h=13100W/m²K)

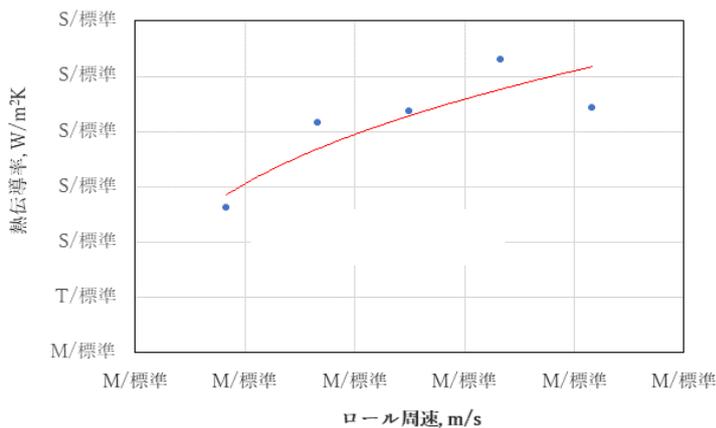


図6 ロール周速度と熱伝達係数の関係

図6に示すように、ロール周速度を熱伝達係数の関係を近似式として求めた。この結果、熱伝達係数hは、 $h=35748 \cdot V_{\text{cast}}^{0.3687}$  として表せば、実際のロール鋳造の予測式として使用できることを明らかにした。（ただし、 $V_{\text{cast}}$ は鋳造速度、である）

### (3) 樹脂/高強度Mg合金二層積層材接合強度の評価

上記の解析結果を踏まえて、AZ91とPA6による二重重ね継手による引張試験を行った。実際に行った引張試験の様子を図7に示す。



図7 樹脂/高強度Mg合金二層積層材の引張試験の様子

実験に使用した、材料は展伸用のAZ31およびPA6である。および、シランカップリング剤は、信越化学工業(株)のエポキシシラン(KBM-403)およびKBE-903を用いて、Mg合金AZ31およびAM60側の表面をシランカップリング処理した。

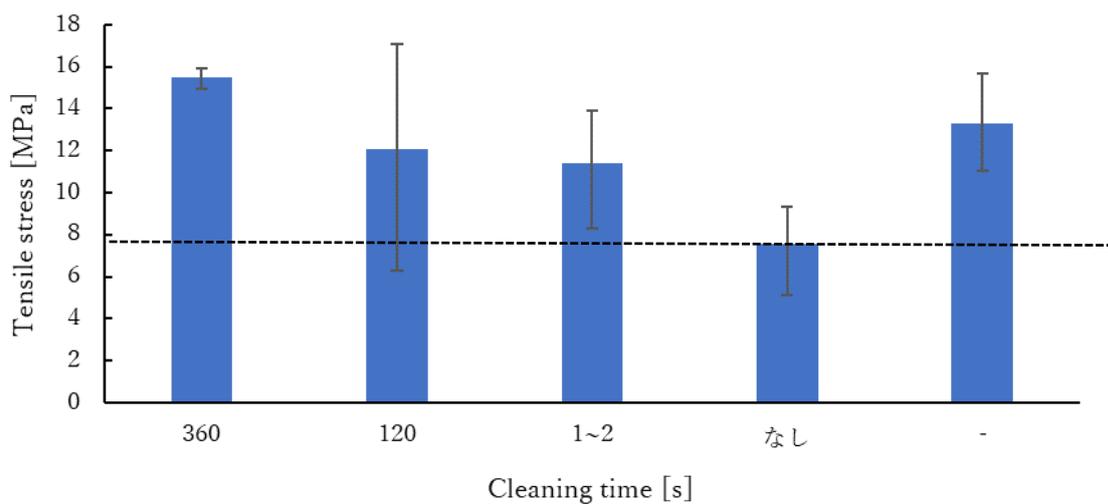


図8 AM60による引張せん断試験の結果(KBM-903使用)

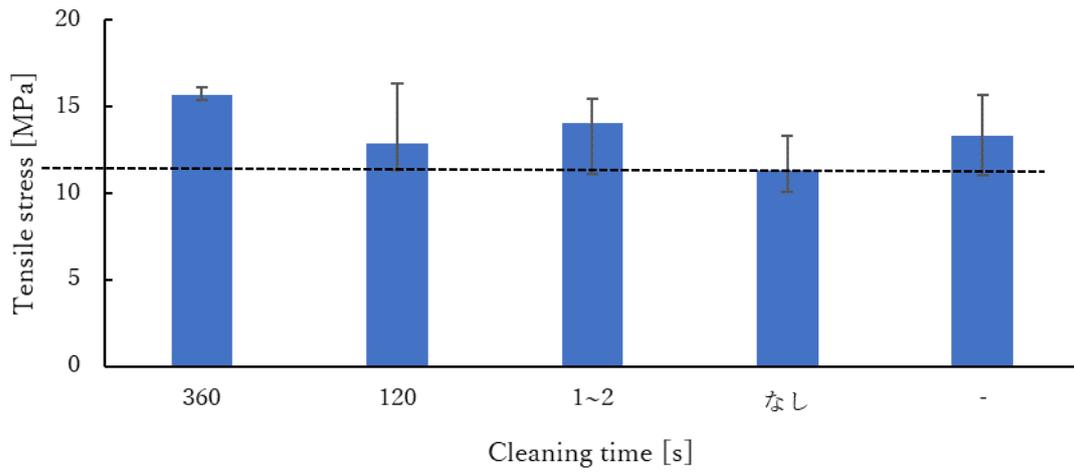


図9 AM60による引張せん断試験の結果(KBM-403使用)

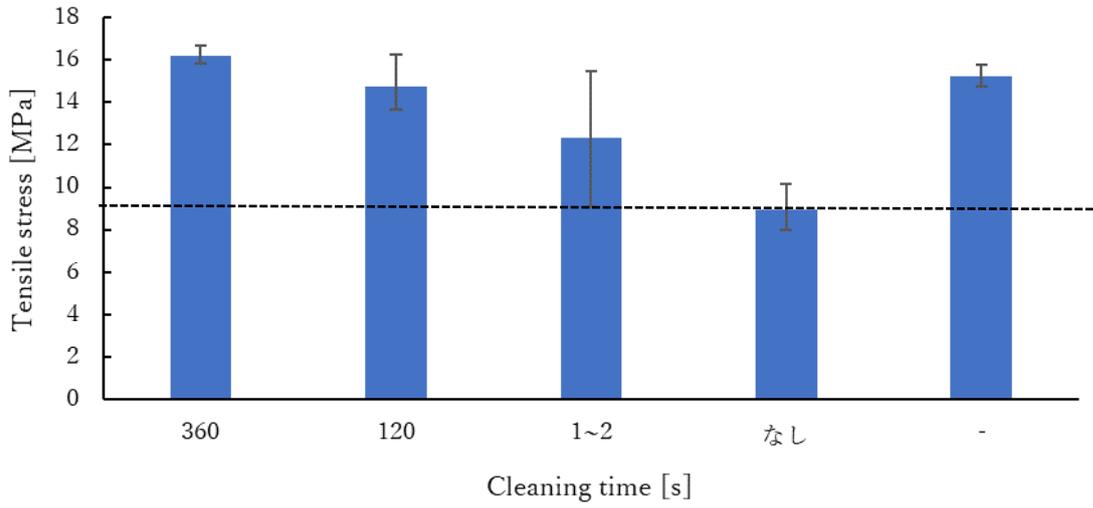


図10 AZ31による引張せん断試験の結果(KBM-903使用)

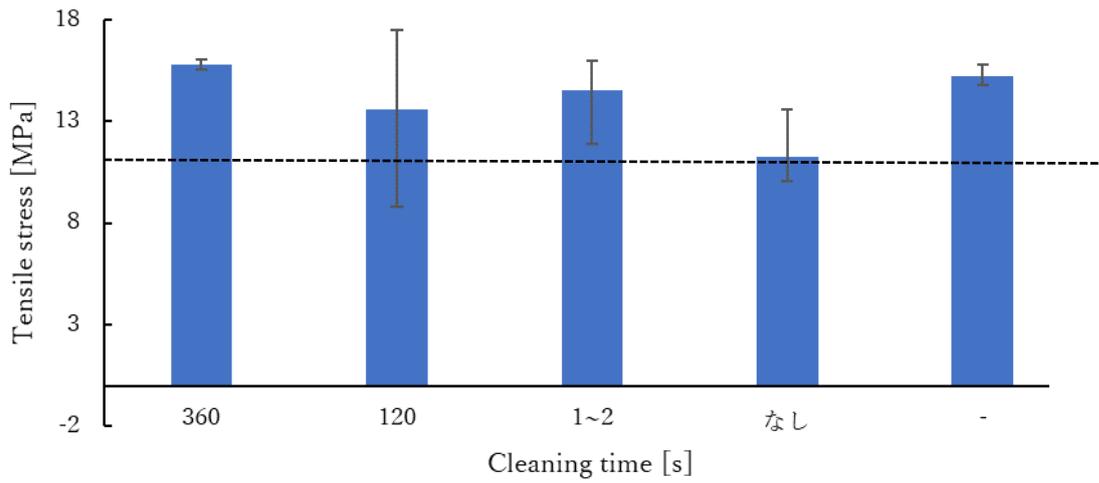


図11 AZ31による引張せん断試験の結果(KBM-403使用)

引張せん断試験の結果の一例をそれぞれ、図8～図11に示している。なお接着にはエポキシ樹脂系接着剤を用いた。シランカップリング剤の洗浄時間が約360秒(5分程度)であり、超音波洗浄後には5分程度洗浄することによって最大の接合強度が得られたことが明らかになった。

#### 4 本研究が実社会にどう活かされるか—展望

『マルチマテリアル化』は、近年、地球環境対策のひとつとしてCO<sub>2</sub>ガスの排出量の削減するため自動車産業において加速している。特に電気自動車(EV)の開発では鋼に代わりアルミニウム(Al)合金やマグネシウム(Mg)合金を使用すること、さらに、より軽量化が期待できる炭素繊維強化複合材料(CFRP)の利用が実用化されてきている。『マルチマテリアル化』による軽量化の実現には、金属材料同士の異材接合だけでなく、材料が異なる金属と樹脂あるいは金属とCFRPとの接合まで要求される。革新的な軽量化の実現には第3世代の異種材料接合と呼ばれている金属と樹脂の接合が重要であり、例えば最軽量実用金属といわれるMg合金と樹脂を接合した素材、さらにその素材の成形が可能であれば軽量化は加速する。

#### 5 教歴・研究歴の流れにおける今回研究の位置づけ

これまでは、Mg合金単体での軽量化を目指していたが、樹脂との接合により軽量化に新しい視野を見出した。今後も、軽量化の研究を進めていきたい。

#### 6 本研究にかかわる知財・発表論文等

(1) Feng Gengyan, Hisaki Watari, Mayumi Suzuki, Tshio Haga and Toru Shimizu, Novel Direct Cladding Process of Magnesium and Aluminum alloys by using a horizontal twin roll caster, Key Engineering Materials, Vol. 880 (2021), pp. 17-22.

(2) 馮 庚琰, 渡利久規, 鈴木真由美, 羽賀俊雄, 横型双ロールキャスターを用いたMg/Al合金クラッド材の製造, 第71回塑性加工学会連合講演会

(3) 戸塚穂高, 関香苗, 渡利久規, 羽賀俊雄, Mg-12 mass%Al-0.2 mass%Mn 双ロール鑄造材の結晶組織に及ぼす注湯温度の影響, 第71回塑性加工学会連合講演会

#### 7 補助事業に係る成果物

なし

## 8 事業内容についての問い合わせ先

所属機関名： 東京電機大学理工学部 (トウキョウデンキダイガクリコウガクブ)

住 所: 〒350-0394

埼玉県比企郡鳩山町石坂

担 当 者: 教授 渡利 久規 (ワタリヒサキ)

担 当 部 署: 機械工学系 (キカイコウガクケイ)

E - m a i l: watari@mail.dendai.ac.jp

U R L: <http://www.rm.dendai.ac.jp/watarilab/index.html>